

優先権主張

出願国 ドイツ国

出願日 1972年7月6日
(P 2233143.7)

追加

特許願

昭和48年7月4日

特許庁長官 三宅幸夫殿



1. 発明の名称 ポリ(オキシメチレン)を基体とする
熱可塑性成形材料

2. 原発明の表示 昭和47年特許願第5634号

3. 発明者

住所(居所) ドイツ国、ランゲンハイン/タウヌス、アム・
トムヘルンウアルト、5

氏名 カルルハインツ・ブルク (ほか2名)

4. 特許出願人

住所(居所) ドイツ国、フランクフルト、アム、マイン
(番地無し)

名称(氏名) フアルブエルケ・ヘキスト・アクチエンゲ
ゼルシャフト・フオルマルス・マイステル・
ルチウス・ウント・ブリュニング

国籍 ドイツ国 代表者 ハンス・ハインツ・ロイテル
代表者 ハインリッヒ・ヘルフリッヒ

5. 代理人

住所 東京都港区芝西久保明舟町15番地(虎の門電気ビル)
(電話 03(502)1476(代表))

氏名 井理士(4013) 江崎光好
(ほか1名)

①9 日本国特許庁

公開特許公報

①特開昭 49-58145

④3公開日 昭49.(1974) 6. 5

②特願昭 48-74939

②出願日 昭48.(1973) 7. 4

審査請求 未請求 (全8頁)

庁内整理番号

⑤2日本分類

6714 45

25mD18

6714 45

25mD68

6660 48

25mAZ9

6714 45

26mB11

7160 45

26mH11

明 細 書

1. 発明の名称 ポリ(オキシメチレン)を基体とする熱可塑性成形材料

2. 特許請求の範囲

線状ポリ(オキシメチレン)99999~90重量%と分枝を有する又は網状化したポリ(オキシメチレン)0001~10重量%との混合物からなる熱可塑性成形材料が更に加えてなか01~10重量%(全混合物に対して)の平均分子量10000~10000000なる重合体——その軟化点は上記ポリ(オキシメチレン)の結晶子融点以下であり、その凍結温度は-120~+30℃である——を含有し、且つその重合体は直径0.1~5ミクロンの粒子として混合物中に存在することを特徴とする熱可塑性成形材料。

3. 発明の詳細な説明

ポリ(オキシメチレン)(POM)が極めて著しい結晶化傾向を有することは公知である。その熔融物を少しく過冷するだけで球晶の速かな

成長が認められ、これは大抵の場合光波長より遙かに大きく、該物質に著しい不透明さを与える。更に結晶化経過の結果として該物質の内部に並びに表面に多数の微視的に小さい亀裂並びに内部的緊張を生ずる。この様な亀裂や内部的緊張によつてポリ(オキシメチレン)からなる成形体、例えば射出成形部材の機械的性質が不都合な影響をうける。上記の瑕疵部は個々の球晶が大きいとすればなる程それだけ著しいものになる。

更に又高分子ポリ(オキシメチレン)に00001~0.5重量%のタルクを添加し、この無機核発生化剤を該有機物質中に均等に分散せしめることによつて射出成形部材の結晶構造を一様にする事ができ、かくして平均球晶直径100ミクロンの粗い球晶構造から球晶直径4~8ミクロンの均質構造をうる事ができることも公知である(ドイツ・アウスレーグシュリフト第1247645号参照)。この場合には射出成形した試料を問題にしているので、上述の程度

字種2字前

に関する記載は加圧下に50〜100℃の温度で結晶化せしめられた製品に関するものである。

更に又無機の核発生化剤を全混合物に対して0.0005〜1.0重量%の量で含み、そして1気圧の圧の下で150℃で成形材料を等温結晶化せしめられた際に形成されたポリオキシメチレン球晶が30〜250ミクロンの直径を有することと特徴づけられている、換算比粘度0.07〜25 dl·g⁻¹、晶子融点140〜180℃なるポリ(オキシメチレン)からなる熱可塑性成形材料が公知である(オーストリア特許第295851号明細書参照)。

更に又ポリオレフィンとエチレン/ビニルアセテート-共重合体とからなる混合物、ポリ(ビニルクロリド)と上記共重合体とからなる混合物及びポリエチレンとエチレン/アクリルエステル-共重合体とからなる混合物——これらの混合物に於ては夫々ゴム様重合体の添加によつて熱可塑性出発原料の衝撃強度が高められた—

明細書参照)。しかしこの場合にはこれから製造された成形体の硬度及び曲げ強さの点に於ての損失を容認せねばならない。

原発明(昭和47年特許出願第5634号)の対象は粒状ポリ(オキシメチレン)99.999〜90重量%と分枝を有する又は網状化したポリ(オキシメチレン)0.001〜10重量%との混合物からなる熱可塑性成形材料である。

本発明の対象は上記熱可塑性成形材料の更なる一つの改良に関するものであり、その特徴とするところは上記成形材料が更に加えてなお0.1〜1.0重量% (全混合物に対して)の平均分子量1000〜1000000なる重合体——その軟化点は前記ポリ(オキシメチレン)の結晶子融点以下であり、その凍結温度は-120℃〜+30℃である——を含有し、且つその重合体は直径0.1〜5ミクロンの粒子として混合物中に存在することである。

本発明による成形材料は個々の成分を普通使用された溶化-、熱-及び光-安定剤と一緒に

特開 昭49- 58145 (2)

——が報告されている(フランス特許第1267912号明細書、ベルギー特許第609574号明細書及び米国特許第2953541号明細書参照。)同時に衝撃に強いポリスチロールを製造する場合には、ポリスチロールにポリジエンゴム、例えばポリブタジエン又はブタジエン/アクリルニトリル-共重合体を重合中又は重合後混合する様にする[Makromolekulare Chemie 101, p.296, (1967)参照]。

しかし上記の重合体混合物の場合にはゴム弾性相を硬い相に合体せしめることによつて衝撃に強くない出発原料に比して硬度の低下が生ずる(例えばChem. and Ind., 1966, p.1399参照)。

最後に又分散相として凍結温度が+30℃以下の重合体を使用する場合、尚又分散せしめられた重合体の粒度が0.1〜5ミクロンである場合に、ポリ(オキシメチレン)は第二の重合体相の合体によつて衝撃強度の改善が達成されうることとも公知である(ベルギー特許第734332号

して急速回転混合機(約1000〜2000 rpm)上で混合し、ついで150〜240℃殊に170〜220℃の温度で押出機中で加工して粒状物となす様にして製造することができる。

この様にして得られた粒状物から限定された条件下に厚さ約100ミクロンのフィルムを製造し(例参照)、これについて位相差顕微鏡によりポリ(オキシメチレン)中に分散せしめられた重合体の粒度を測定することができる。分散相の粒度は多数のパラメーター、例えば混合すべき重合体の種類及び濃度、混合温度、重合体の熔融粘度及び混合装置の状態に依存する。

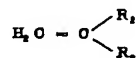
従つて粒度に関する混合条件の最適化を上記の顕微鏡的技術によつて追求しそして操作することが好都合である。

線状の或は分枝を有する又は網状化したポリ(オキシメチレン)とは原発明の明細書中に記載されている様にホルムアルデヒド及びトリオキサンのホモ重合体及び共重合体である。

本発明による成形材料の付加的な変性成分

としては軟化温度が夫々のポリ(オキシメチレン)の結晶子融点以下で、好ましくは+50~+160℃であり、その凍結温度が-120~+30℃好ましくは-80~0℃である重合体が適当である。

殊に次式



[式中、 R_1 は水素原子又はメチル基であり、 R_2 は水素原子、カルボキシ基、2~10個殊に2~5個の炭素原子を含むアルキルカルボキシ基、2~5個殊に2又は3個の炭素原子を有するアシルオキシ基、又はビニル基を意味する。]

なるオレフィン系不飽和化合物のホモ重合体並びに共重合体を使用される。

例としては次のものが挙げられる：

1. α -オレフィンのホモ-及び共-重合体、例えばポリエチレン、エチレン/プロピレン-共重合体、エチレン/アクリル酸エステル

クリレート)、ポリ(ブタジエンメタアクリレート)、ポリ(ヘキシルメタアクリレート)、ポリ(2-エチルヘキシルメタアクリレート)及びポリ(オクチルメタアクリレート)。

更に実性混合成分としてポリエーテル及びポリエステルが使用される。ポリエーテルとは環状エーテルのホモ-及び共-重合体が了解されるべきである。例えばポリ(エチレンオキシド)、ポリ(プロピレンオキシド)、ポリ(3,3-ジメチルオキサセタン)などである。特に適当なのはエチレンオキシド/プロピレンオキシド-共重合体及びポリ(テトラヒドロフラン)である。ポリエステルは2塩基性カルボン酸とジオールとからなる化合物である。殊に好適なのは炭素原子数4~12個の線状の脂肪族ジカルボン酸と炭素原子数2~8個殊に2~4個の α 、 ω -ジオールとからなるポリエステルで、例えばセバシン酸/エチレングリコール-ポリエステル、セバシン酸/ブタンジオール-ポリエステルである。

特開 昭49- 58145(3)

-共重合体、エチレン/メタアクリル酸エステル-共重合体、エチレン/アクリル酸-共重合体。特にポリエチレン並びにエチレンとビニルアセートとからなる共重合体及びエチレンと炭素原子数4~12個殊に4~7個のアクリル酸エステルとの共重合体(これら共重合体に於てエチレンの重量割合は40~90%殊に50~80%である)。

2. 炭素原子数4又は5個の1,3-ジエンのホモ-及び共-重合体、例えばポリブタジエン、ポリイソブレン、ブタジエン/スチロール-共重合体、ブタジエン/アクリルニトリル-共重合体。
3. ビニルエステルのホモ-及び共-重合体、例えばポリ(ビニルアセート)、ポリ(ビニルプロピオネート)及びポリ(ビニルブチラート)。
4. アクリル酸エステル又はメタアクリル酸エステルのホモ-及び共-重合体、例えばポリ(エチル-アクリレート)、ポリ(ブチル-

重合体である混合成分の分子量は広範囲に変動することができる。適当なのは分子量1000~1000000殊に1000~300000^{1/2}の生成物である。而して分子量が5000~15000である(粘度計による分子量)混合成分を用いた場合に特に良好な結果が得られた。

混合すべき重合体の濃度は全混合物に対して0.1~10重量%殊に0.1~5重量%である。分散せしめられた重合体0.3~5重量%を含む混合物を用いた場合に特に良好な結果が得られる。

混合された分散相の粒子の直径は0.1~5ミクロン殊に0.1~3ミクロンの範囲にある。特に有利なのは0.2~2ミクロンの粒子直径を有する重合体である。

本発明による成形材料には個々の成分を混合する際に熱、酸素及び光の影響に対する安定剤を添加することができる。熱安定剤としては例えばポリアミド、多塩基性カルボン酸のアミド、

アミジン化合物、ヒドラジン化合物、尿素化合物、ポリ(γ-ビニルラクタム)及びカルボンのアルカリ土類塩が適する。酸化安定剤としてはフェノール類、殊にビスフェノール化合物、及び芳香族アミンが使用され、一方α-ヒドロキシ-ベンゾフェノン-及びベンゾトリアゾール-誘導体は良好な光安定剤である。これら安定剤は全混合物に対して全体で0.1~1.0重量%殊に0.5~5重量%の量で使用される。

明らかに、分枝を有する又は網状化したポリ(オキシメチレン)並びに付加的に使用した重合体の存在によつて一方に於ては本発明による成形材料の核発生化——これは球品の減少化によつて証明せられる——が行われ、他方又本発明による成形材料から製造された成形体の機械的性質の改善が行われる。例えば変性されていない線状ポリ(オキシメチレン)に比し球圧硬度はそのまゝでねじり強度の増昇が認められる(表参照)。核発生化の一つの結果として加工速度の増昇を可能ならしめる結晶化速度の増大

混合し、スクリーン型押出機中で200℃で均質化する。押出機のシリンダー中に於ける滞留時間は約4分である。変性成分の粒子の直径は押出条件、例えば混合物の温度又はスクリーンの回転数を変化せしめることによつて調整される。

得られた生成物から該成形材料を温度180℃、圧力200 kg/cm²の下で2枚のガラス板の間で熔融し、ついで大気圧下150℃で結晶化せしめて約10ミクロンの厚さのフィルムを製造する。このフィルムを偏光顕微鏡で調査することによりポリ(オキシメチレン)の球品の平均的大きさを測定することができ、一方このフィルムを位相差顕微鏡で調査することにより変性成分の粒度を測定することができる。

更に得られた生成物から60×60×2mmの寸法の板を混合物温度200℃、成形温度80℃で射出成形し、これを衝撃強度を試験するためにドロンプテストに付する。この目的で特に張つた板を衝撃応力に付するが、その際一定重

特開 昭49- 58145 (4)

が生ずる。この加工速度がより速かになるということは、特に、射出成形に於けるサイクル時間が一層短くなること及び射出成形部材の許容差が一層狭くなることで注目される。

本発明による成形材料は機械的に例えば細かく切り刻むか又は粉碎することによつて粒状物、切片、薄片又は粉末などに破碎することができ、又熱可塑的に例えば射出成形又は押出成形によつて加工することができる。又該成形材料は半製品並びに完成品、例えば樹木、棒、板、フィルム、帯状物、管及びホースなどの成形体並びに家庭製品、例えば皿、コップなど、及び寸法的に安定なそして限界寸法内の機械部材、例えばケーシング、歯車、軸受部材、操縦エレメントなどを製造するための工業的材料として適する。

例

本発明による成形材料の個々の成分の種々の量をビス-(2-ヒドロキシ-3-第三ブチル-5-メチル-フェニル)-メタン0.5重量%及びジシアングリアミド0.1重量%と共に緊密に

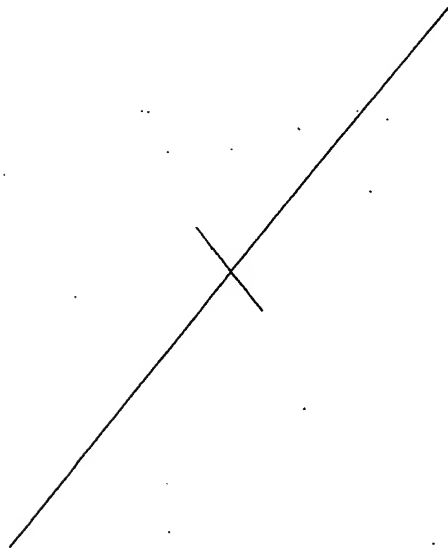
量のドロフベンマー——その衝突部分は直径2mmの半球として形成されている——を種々の高さから摩擦が少い様にして垂直に板の上に落下せしめる。衝撃強度の尺度としては板の50%が破壊する高さが記される(40回のドロフテストの平均値)。

球圧硬度は射出成形した検体につきVDE 0302により10秒間の負荷時間で測る。メルトインデックス(η)はDIN 53735により190℃で216 kgの負荷の下に測る。換算比粘度(=RBV値:η_{red})はジフェニルアミン2重量%を含むγ-ブチロラクトンに溶解した夫々の重合体の溶液について140℃で0.5 g/100 mlの濃度で測定する。

本発明による成形材料を特徴づけるために次表に夫々線状ポリ(オキシメチレン)、分枝を有する又は網状化したポリ(オキシメチレン)及び変性混合成分の割合と化学的組成、個々の成分の熔融粘度又はその分子量又は換算比粘度、分散せしめた混合成分の凍結温度及び粒子

直径、ポリ（オキシメチレン）の球晶の大きさ、
球圧硬度、ねじり強度及びドロップ高度を示す。
尚例 A - F は比較例である。

特開 昭49- 58145 (5)



例	線状ポリオキシメチレン			分枝を有する又は網状化したポリオキシメチレン			変性成分						球圧硬度 ($Kp \cdot cm^{-2}$)	ねじり 強度 ($Kp \cdot cm^{-2}$)	衝撃強度		球晶の 大きさ (μ クロン)
	組成 (重量%)	RSV-値 ($4.6 \cdot g^{-1}$)	メルトイン デクサス ($g/10min$)	組成 (重量%)	メルトイン デクサス ($g/10min$)	量 (重量%)	組成 (重量%)	メルトイン デクサス ($g/10min$)	分子量	凍結 温度 ($^{\circ}C$)	粘度 (ϵ クロ ン)	重 (重量 %)			ヘ 重量 (g)	トップ 高度 (cm)	
A	ホルムアルデヒド ホモ重合体 (アセチル化)	0.69	8.9	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1640	2000	500 200	10 13	482
B	共重合体 F/AO (98/2)	0.73	9.0	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1436	1360	500 200	10 13	521
C	共重合体 TO/AO (98/2)	0.64	27.0	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1448	1380	500 200	10 12	515
D	共重合体 TO/DO (97/3)	0.70	9.1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	1460	1390	500 200	10 14	434
E	共重合体 TO/AO (98/2)	0.73	9.0	—	—	—	共重合体 エチレン-ビナ (68/32)	24	—	-15.02-2	5	3	1350	1300	500	270	419
F	共重合体 TO/DO (97/3)	0.70	9.1	—	—	—	ポリエチレン	8.6	—	-60.05-5	3	3	1340	1290	200	180	472
1	ホルムアルデヒド ホモ重合体 (アセチル化)	0.69	8.9	共重合体 TO/AO/EDGE (98/1.9/0.2)	0.2	0.1	共重合体 エチレン-ビナ (68/32)	13	—	-18.05-5	5	5	1400	2150	500	200	32
2	ホルムアルデヒド ホモ重合体 (アセチル化)	0.69	8.9	共重合体 TO/AO/EDGE (97/2.4/0.6)	0.01	0.5	ポリオキシメチレン フラン	—	40000	-79.01-2	2	2	1610	2150	200	175	25
3	共重合体 TO/AO (98/2)	0.73	9.0	共重合体 TO/AO/EDGE (97.9/2/0.1)	0.08	1.0	共重合体 エチレン-ビナ (68/32)	24	—	-15.02-2	3	3	1410	1440	500	230	21
4	共重合体 TO/DO (97/3)	0.70	9.1	POM I	0.77	1.0	共重合体 AO/PO (80/20)	—	50000	-70.05-5	5	5	1366	1390	500	185	15
5	共重合体 TO/AO (98/2)	0.64	7.0	POM II	1.0	1.0	ポリエチレン オキッド	—	50000	-67.05-5	3	3	1400	1490	200	195	7
6	共重合体 TO/DO (97/3)	0.70	9.1	POM III	0.1	1.0	共重合体 エチレン-ビナ (80/20)	—	30000	-45.05-5	3	3	1420	1460	200	145	10
7	共重合体 TO/AO (98/2)	0.64	27.0	共重合体 TO/AO/EDGE (98/1.95/0.05)	1.0	1.0	ポリエチレン	—	40000	-80.05-5	0.6	0.6	1440	1490	500	120	42
8	共重合体 TO/AO (98/2)	0.73	9.0	共重合体 TO/AO/EDGE (98/1.9/0.1)	0.4	1.0	ポリエチレン	—	60000	-80.05-5	0.3	0.3	1440	1460	500	127	19
9	共重合体 TO/DO (97/3)	0.70	9.3	POM IV	0.5	0.5	ポリ-(2-エ ル-キシメチ アクリレート)	—	110000	-50.05-5	3	3	1400	1440	200	170	12

上記の表中に下記の略号を使用した：

TO = トリオキサン

EO = エチレンオキシド

DO = 1,3-ジオキソラン

PO = プロピレンオキシド

Vina = ビニルアセテート

AA = エチルアクリレート

BDOE = 1,4-ブタンジオールジグリシジルエーテル

MGF = メチルグリシジルホルマール

AM = アクリルニトリル

分枝を有する又は網状化したポリ(オキシメチレン) POM I, POM II, POM III 及び POM IV は次の様にして製造した：

POM I

トリオキサン 1000 g、エチレンオキシド 20 g 及び D-グリシドオキシ-桂皮酸メチルエステル 30 g よりなる混合物にシクロヘキサノ 40 容量部中に BE₂-ジブチル-ジ-n-ブチルエーテラート 1 容量部を含む触媒溶液 3.5 ml を加え、この混合物を層厚 0.8 mm の密閉容器中

アルコール 350 ml 中で 30 分間 120℃ で 80 重量% のヒドラジンヒドレート溶液 0.3 ml で処理する。これにより重合体のメルトインデックスは $\eta_{sp}/c = 1.56 \text{ g}/10 \text{ min}$ から $\eta_{sp}/c = 10 \text{ g}/10 \text{ min}$ に変化する。

POM II

トリオキサン 900 g とエピクロルヒドリン 100 g とからなる混合物を、POM I に対して記載の如くして、シクロヘキサノ 20 容量部と三弗化硼素-ジ-n-ブチルエーテラート 1 容量部とからなる混合物 5 g の使用下に重合せしめる。得られた重合体塊を粉碎し、この粉末を 30 分間メタノール中で煮沸する。ついで吸引ろ過し、窒素下に 50℃ で乾燥した後 RBV-値 0.64 dl·g⁻¹、クロル含量 4.1 重量% の重合体粉末が得られる。

この重合体の 100 g を水酸化カリウム 100 g、水 1700 g 及びメタノール 3300 g と共にオートクレーブ中で窒素下に 2 時間 155℃ で攪拌する。冷後に残留している塊状物を粉

特開 昭49- 58145(7)

で 70℃ の一定温度中で重合せしめる。重合時間は 30 分である。得られた重合体塊を粉碎し、不安定な半アセタール末端基及び残存単量体を除去するためにトリエタノールアミン 1 重量% を含むベンジルアルコール中で 30 分間 150℃ で処理する。冷後重合体を吸引ろ取し、メタノールと共に数回よく煮沸し、50~70℃ で減圧下に乾燥する。重合体の収量は 670 g である。又この重合体の RBV-値は 0.78 dl·g⁻¹ で、 η_{sp}/c 値は 1.27 g/10 min である。

ついで得られた重合体を粉碎し、10 時間キセノンテストランプで照射する。この後にはもはや RBV-値は測定できない。それは重合体がもはやブチロラクトン中に僅かにしか溶解しないからである。メルトインデックス (η_{sp}/c) は 0.77 g/10 min である。

POM III

トリオキサン 1000 g、エチレンオキシド 20 g 及び D-グリシドオキシベンズアルデヒド 50 g よりなる共重合体 10 g をベンジルア

ルコール 350 ml 中で 30 分間 120℃ で 80 重量% のヒドラジンヒドレート溶液 0.3 ml で処理する。これにより重合体のメルトインデックスは $\eta_{sp}/c = 1.56 \text{ g}/10 \text{ min}$ から $\eta_{sp}/c = 10 \text{ g}/10 \text{ min}$ に変化する。

このヒドロキシル基含有重合体 25 g をビス-(2-ヒドロキシ-3-第三ブチル-5-メチル-フエニル)-メタン 125 mg 及びジシアンジアミド 25 mg と共に 190℃ で窒素下にブラベンダー-プラストグラフ中で熔融する。ついで 1,4-ジアザビシクロ-[2,2,2]-オクタン 200 mg を添加した後全体で 500 mg の 4,4'-ジイソシアナトジフエニルメタンを少量づつ 5 分以内で配量する。この場合混合物の熔融粘度は強く上昇する。更に 5 分の後この混合物を冷却する。生成物の η_{sp}/c 値は 0.1 g/10 min である。粘度の測定は重合体がブチロラクトンに不溶であるため不可能である。

POM IV

トリオキサン 95 g と D-グリシドオキシニトロベンゾール 5 g とからなる混合物に触媒と

してシクロヘキサン40容量部中に Br_2 -ジブチルエーテラート1容量部を含む触媒溶液0.7mlを加え、ついでPOM Iに対して記載の如くして重合を行い、後処理する。但しこの場合には重合時間は60分である。ついで洗浄し、そして乾燥した重合体粉末を80重量多ヒドラジンヒドラート水溶液50mlが添加されているベンジアルアルコール28中に120~130℃で溶解し、溶解後微量のラネー-ニッケルを加える。この反応混合物を30分間120~130℃に保つ。冷後重合体を吸引濾取し、メタノールと共によく煮沸し、50~70℃で減圧下に乾燥する。アミノ基含有重合体の収量は77%であり、そのメルトインデックスは157g/10min.である。

この重合体25gを1,4-ジアザビシクロ[2.2.2]オクタン200mgと共に190℃で熔融し、3分以内に4,4'-ジイソシアナトジフェニルメタン3.00mgを少量づつ添加する。この場合熔融物の粘度は強く上昇する。更に3分の後

反応を終結せしめる。RBV-値の測定は網状化度が高いためにもはや不可能である。 η_{sp} -値は0.5g/10min.である。

4. 追加の関係

原発明(昭和47年特許出願第5634号)は線状ポリ(オキシメチレン)92999~90重量多と分枝を有する又は網状化したポリ(オキシメチレン)0001~10重量多との混合物からなる熱可塑性成形材料に関するものである。これに対し本発明は原発明による熱可塑性成形材料に更に加えて0.1~10重量多(全混合物に対して)の特定な重合体を混合した熱可塑性成形材料に関するものである。

従つて本発明は原発明の構成に欠くことのできない事項の全部をその構成に欠くことのできない事項の主要部としている発明であつて且つ原発明と同一の目的を達成するものであるから本発明は原発明に対し追加の関係を有する。

代理人 江崎光好

代理人 江崎光史

6. 添附書類の目録

明細書	1通
委任状	1通
優先権証明書	1通
願書副本	1通

7. 前記以外の発明者、代理人

(1) 発明者

住所 ドイツ国、マイン、エリーザベト・ラングゲセル・ストラーセ、5
氏名 ルドルフ・ケルン
住所 ドイツ国、フランクフルト/マイン、エストリツヒエル・ウエーク、29
氏名 ハインツ・シュミット

5字挿入

(2) 代理人

住所 東京都港区芝西久保明舟町15番地(虎の門電気ビル)
(電話 03 (502) 1476 (代表))
氏名 弁理士 (6955) 江崎光史

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.